

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-338708

(43)Date of publication of application : 27.11.2002

(51)Int.Cl.

C08J 5/18
B29C 55/14
// B29K 67:00
B29L 7:00
C08L 67:00

(21)Application number : 2001-150443

(71)Applicant : MITSUBISHI POLYESTER FILM
COPP

(22)Date of filing : 21.05.2001

(72)Inventor : CHIIASAKO MASASHI
MIHASHI KATSUZO
TANAKA YOSHIKAZU

(54) POLYESTER FILM

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a polyester film having an excellent insulation property and suitable for a usage of a film capacitor as well as a usage of various kinds of electric parts.

SOLUTION: In the polyester film, it is characterized that an amount of incinerated residue in the film is 1,000 ppm or lower. It is preferable that the amount of incinerated residue is 100 ppm or lower. It is preferable that a glass transition temperature of the film is 100° C or higher.

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-338708

(P2002-338708A)

(43)公開日 平成14年11月27日(2002.11.27)

(51)Int.Cl.⁷

C 0 8 J 5/18
B 2 9 C 55/14
// B 2 9 K 67:00
B 2 9 L 7:00
C 0 8 L 67:00

識別記号
CFD

F I
C 0 8 J 5/18
B 2 9 C 55/14
B 2 9 K 67:00
B 2 9 L 7:00
C 0 8 L 67:00

テーマコード*(参考)
4 F 0 7 1
4 F 2 1 0

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 4 頁)

(21)出願番号

特願2001-150443(P2001-150443)

(22)出願日

平成13年5月21日(2001.5.21)

(71)出願人 000108856

三菱化学ポリエスチルフィルム株式会社
東京都港区芝四丁目2番3号

(72)発明者 穂 雅司

滋賀県坂田郡山東町井之口 347番地 三
菱化学ポリエスチルフィルム株式会社中央
研究所内

(72)発明者 三橋 勝三

滋賀県坂田郡山東町井之口 347番地 三
菱化学ポリエスチルフィルム株式会社中央
研究所内

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 ポリエスチルフィルム

(57)【要約】 (修正有)

【課題】 優れた電気絶縁特性を有し、フィルムコンデンサ用途をはじめとする各種電気部品用途において好適なポリエスチルフィルムを提供する。

【解決手段】 フィルム中の灰化残存物量が1000 ppm以下であることを特徴とするポリエスチルフィルム。灰化残存物量は100 ppm以下であることが好ましい。また、フィルムのガラス転移点は100°C以上であることが好ましい。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 フィルム中の灰化残存物量が1000 ppm以下であることを特徴とするポリエステルフィルム。

【請求項2】 フィルム中の灰化残存物量が100 ppm以下であることを特徴とする請求項1記載のポリエステルフィルム。

【請求項3】 ガラス転移温度が100°C以上であることを特徴とする請求項1～3のいずれかに記載のポリエステルフィルム。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、電気絶縁性に優れたポリエステルフィルムに関する。

【0002】

【従来の技術】 ポリエステルフィルムは、その優れた強度と絶縁抵抗などから絶縁性を必要とする各種電気部品に使用されてきた。例えば、フィルムコンデンサ用途、フレキシブルプリント配線基板用途、電線被覆用途などが挙げられる。これらの用途で使用されるポリエステルフィルムは、高電圧が長時間印加されても絶縁性を保持することが求められており、特に絶縁性が低下する高温域における保持時間あるいは印加電圧の増加圧力がますます高まっている。かかる要求に応えるべく、従来最も良く使用されてきたポリエチレンテレフタレートに代えて、ポリエチレンナフタレートなど新規素材が使用される例が増えてきており、一定の成果は上げてはいるが、尚も更なる絶縁特性の向上が求められている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、上記実情に鑑みなされたものであって、その解決課題は、優れた電気絶縁特性を有し、フィルムコンデンサ用途をはじめとする各種電気部品用途において好適なポリエステルフィルムを提供することにある。

【0004】

【課題を解決するための手段】 本発明者らは、上記課題に鑑み鋭意検討の結果、フィルム中の灰化残存物量を極限まで低減することによって絶縁特性を著しく向上させることを見いだし、本発明を完成するに至った。

【0005】 すなわち、本発明の要旨は、フィルム中の灰化残存物量が1000 ppm以下であることを特徴とするポリエステルフィルムに存する。

【0006】

【発明の実施の形態】 以下、本発明を詳細に説明する。本発明でいうポリエステルとは、ジカルボン酸成分とグリコール成分とが重縮合されたポリマーであって、ジカルボン酸の例としては、テレフタル酸、イソフタル酸、フタル酸、2, 6-ナフタレンジカルボン酸、4, 4'-ジフェニルジカルボン酸等の芳香族ジカルボン酸、あるいはアジピン酸、アゼライン酸、セバシン酸、1, 4-

ーシクロヘキシリジカルボン酸等の脂肪族ジカルボン酸が挙げられ、グリコールの例としては、エチレングリコール、プロピレングリコール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール、トリメチレングリコール、テトラメチレングリコール、ネオペンチルグリコール、1, 4-シクロヘキサンジメタノール等が挙げられる。

【0007】 本発明のフィルムは、灰化残存物量が1000 ppm以下、好ましくは500 ppm以下、さらに好ましくは100 ppmである。灰化残存物量が1000 ppmを超えると、電気絶縁性が低下するため好ましくない。一般的にポリエステルフィルムに含まれるものうち、灰化処理した際に残存する主な無機化合物成分として、ポリエステル重合に関わる成分と、滑り性付与のため形成される表面突起の核剤としての粒子成分とが挙げられる。前者として最も一般的なものは三酸化アンチモン／正リン酸／酢酸マグネシウム等々の混合系であり、通常400～600 ppm以上含まれている。後者の例としては、無定形シリカ、球状シリカ、天然炭酸カルシウム、合成炭酸カルシウム、アルミナ、カオリーン、タルク等々が挙げられ、一般的には300 ppm以上含有される。

【0008】 特にコンデンサ用等のように厚さが10 μmに満たない薄番手においては、表面突起形成能が著しく低下するため、通常3000 ppm以上の粒子が含有される。ところが、重合触媒系も滑剤粒子系もポリエステルが本来有する電気絶縁特性を損ねるという点では等しく負因子となっており、本発明のフィルムは両者および多目的で含有される他無機成分を含め、1000 ppm以下としなければならない。かかる灰化残存物量を実現するためには、前述の2要素の少なくとも一方の要素をほとんど無視できるようにすれば良い。

【0009】 滑剤粒子の含有量を著しく低減するためには、使用するポリエステルに粒子を含有を極力低減せねば良い。ただし、単に無粒子系や極少粒子系としただけでは、滑り性が極端に低下するためフィルム製造時およびフィルム使用時におけるハンドリングに支障が出る。そこで、押出成形後延伸前の工程において、滑剤粒子を含有するコート層を設けることで、滑り性を付与する方法などの措置を取ることが必要となる。かかる手法に使用される滑剤粒子は成分としてはフィルム含有に使用されるものをそのまま使用することができ、サイズをコート層厚みに合わせ、その粒径を数十nmレベルとした上で、厚さ数十nmのコート層に数重量%含有されれば十分である。一方、重合触媒系の含有量を著しく低減するためには、重合主触媒を最も一般的なアンチモン化合物ではなくチタン化合物とする等の処方を取ることが好ましい。重合主触媒のチタン化合物の例としては、テトラブチルチタネート、テトラプロピルチタネート、等々が挙げられ、チタン元素量として数ppmあれば工業的に生産可能な重合時間内で十分にポリエステル

の製造が可能である。

【0010】本発明のフィルムは、耐熱性の観点からガラス転移温度が100°C以上、可能であれば110°C以上であることが推奨される。ガラス転移温度が100°C以上であれば、室温よりも高い温度雰囲気下、特に湿潤かつ高温雰囲気下において優れた電気絶縁特性を發揮する。ガラス転移温度が100°Cであって、工業的にフィルム製造が可能な好ましいポリエステル素材の例としてエチレンナフタレート単位、すなわち2, 6-ナフタレンジカルボン酸成分とエチレングリコール成分とが縮合したエステル単位を主たる成分とするポリエステルが挙げられる。とりわけエステル単位の97モル%以上がエチレンナフタレートであるポリエチレンナフタレートが好適である。本発明で得られるポリエステルフィルムには、発明の主旨を損ねない限りにおいて、各種表面処理を行うことができる。前述の滑り性付与のための易滑コート層の他に、要すれば紫外線吸収剤等々の耐候性コート層、遮光コート層等を設けてもよい。また、染料などの有機化合物をフィルム中に含有させてもよい。

【0011】

【実施例】以下、本発明を実施例によりさらに詳細に説明するが、本発明は、その要旨を越えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。なお、以下の諸例において、「部」とあるのは重量部の意味である。

【0012】(1) 灰化残存物量 [ppm]

試料フィルムを秤量した上で硫酸を適当量含ませた上で、白金坩堝内に入れガスバーナーで灰化処理を行った。得られた灰化残存物を秤量し、元の試料フィルムに対する比率を求め灰化残存物量とした。

【0013】(2) ガラス転移温度 [°C]

試料フィルムを窒素雰囲気下溶融した後液体窒素に浸漬し急冷固化したガラス固体を調製する。得られたガラス固体を昇温速度10°C/分にてDSC測定を行い、ガラス転移温度を求めた。

【0014】(3) 残存率 [%]

試料フィルムよりをアルミ箔と重ね合わせて巻き回し、端面にメタリコンを施した後、各電極端子にリードを取りつけてコンデンサーを作製する。得られたコンデンサを135°C大気圧下にて500Vの直流電圧を印加し続け、5時間後に尚も絶縁特性を保持している素子の比率すなわち残存率を求めた。残存率が80%以上であるものを高温絶縁性良好、90%以上であるものを高温絶縁性優良とした。

【0015】(ポリエステルの製造)

・ポリエステルA

2, 6-ナフタレンジカルボン酸100部とエチレングリコール70部とを反応器に仕込み、エステル交換を行った。すなわち、反応開始温度を225°C、内圧を0.9kg/cm³とし反応を開始し、その後徐々に反応温度を上昇させ、4時間後に260°Cまで昇温し、エステ

ル交換反応を終了させた。次いで正磷酸をポリエステル樹脂の理論収量に対して燐原子として18ppmとなるよう、次いで酢酸コバルト4水和物をポリエステル樹脂の理論収量に対してコバルト原子として15ppmとなるよう、さらにテトラ-n-ブチルチタネートを、ポリエステル樹脂の理論収量に対してチタン原子として5ppmとなるようにそれぞれ順次添加し、重縮合反応を行った。すなわち、反応温度を260°Cから徐々に高めるとともに圧力を常圧から徐々に減じ、2時間後に温度を280°C、圧力を1mmHg以下とし、所定の時間経った時点で反応を停止し、ポリエステルAを得た。ポリエステルAの固有粘度は0.61dl/gであった。

【0016】・ポリエステルB

テトラ-n-ブチルチタネート添加後、凝集シリカ（平均粒径0.3μm）のエチレングリコールスラリーを添加した他はポリエステルAと同様にしてポリエステルBを得た。ポリエステルBの固有粘度は0.61dl/g、含有シリカ濃度は300ppmであった。

【0017】・ポリエステルC

20 重合主触媒をテトラ-n-ブチルチタネート5ppmに代えて、三酸化アンチモン300ppmとした他はポリエステルAと同様にしてポリエステルCを得た。ポリエステルCの固有粘度は0.60dl/gであった。

【0018】・ポリエステルD

三酸化アンチモン添加後、無定形シリカ（平均粒径1.3μm）のエチレングリコールスラリーを添加した他はポリエステルCと同様にしてポリエステルDを得た。ポリエステルDの固有粘度は0.62dl/g、含有シリカ濃度は500ppmであった。

【0019】・ポリエステルE

2, 6-ナフタレンジカルボン酸100部に代えて、テレフタル酸100部とした他はポリエステルAと同様にしてポリエステルEを得た。ポリエステルEの固有粘度は0.70dl/gであった。

【0020】実施例1

ポリエステルAをベント式2軸押出機にて290°Cで溶融し、Tダイよりシート状に押し出した。押し出し後直ちに冷却ドラム上で50°Cまで急冷し実質的に非晶質のフィルムを得た。得られた非晶質フィルムに日産化

40 (株) 製シリカ微粒子SL-YLを水分散系ポリエステル塗布剤と混合したものをコーティングした。塗布層の乾燥後、ロール延伸機にて長手方向に130°Cで4.0倍延伸し、さらにテンター延伸機にて、横方向に160°Cで4.0倍延伸を施した後、引き続きテンター内で幅方向に7%の弛緩を施しながら240°C1秒間の熱固定を施し、さらに幅を固定して160°C1秒間の熱固定を施した後、室温まで冷却して巻き取りフィルム製品とした。得られたフィルムは、厚さ3.7μm、固有粘度0.57dl/gであった。

【0021】実施例2

ポリエステルAに代えて、ポリエステルBを使用したほかは実施例1と同様にしてポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムは、厚さ3.7μm、固有粘度0.57d1/gであった。

【0022】実施例3

ポリエステルAに代えて、ポリエステルCを使用したほかは実施例1と同様にしてポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムは、厚さ3.7μm、固有粘度0.56d1/gであった。

【0023】比較例1

ポリエステルAに代えて、ポリエステルDを使用したほかは実施例1と同様にしてポリエステルフィルムを得 * 10

*た。得られたフィルムは、厚さ3.7μm、固有粘度0.58d1/gであった。

【0024】比較例2

ポリエステルAに代えて、ポリエステルAとポリエステルEとを重量比60:40で混合したポリエステルを使用し、さらに縦延伸温度を130°Cに代えて85°C、横延伸温度を160°Cに代えて100°Cとしたほかは実施例1と同様にしてポリエステルフィルムを得た。得られたフィルムは、厚さ3.7μm、固有粘度0.62d1/gであった。

【0025】

【表1】

ポリエステル	実施例	灰化残存物量			組成		5時間後 残存率(%)
		触媒系	粒子系	計	E N	E T	
A	実施例1	70	2	72	100	0	92
B	実施例2	70	300	370	100	0	88
C	実施例3	600	2	602	100	0	83
D	比較例1	600	5000	5600	100	0	75
E	比較例2	70	2	72	0	100	58

【0026】

【発明の効果】本発明のポリエステルフィルムは、優れた電気絶縁特性を有し、フィルムコンデンサ用途をはじ※

※めとする各種電気部品用途のポリエステルフィルムとして好適であり、その工業的価値は非常に高い。

フロントページの続き

(72)発明者 田中 義和

滋賀県坂田郡山東町井之口 347番地 三 30

菱化学ポリエステルフィルム株式会社中央
研究所内

★ F ターム(参考) 4F071 AA43 AA86 AF39 AF53 AH12

BC01

4F210 AA24 AC03 AG01 AH33 AR06

AR12 QA02 QA03 QC06 QG01

QW07

★